

Ir-193 の NEET 微細構造の観測 Observation of the NEET Fine Structure on Ir-193

岸本 俊二^a, 依田 芳卓^b, 春木 理恵^c
Shunji Kishimoto^a, Yoshitaka Yoda^b, Rie Haruki^c

^a大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構, ^b(公財)高輝度光科学研究センター,
^c(独)日本原子力研究開発機構
^aKEK, ^bJASRI, ^cJAEA

イリジウム (Ir) 193 (核励起準位 : 73.04 keV、半減期 : 6 ns) は、“軌道電子遷移による原子核励起” (NEET) が観測可能な核種である。金 197 では NEET による原子核励起が観測されるだけでなく、核励起が観測され始める入射 X 線エネルギーより高い側で励起事象数に XAFS と似た微細構造が観測される。今回の実験では、イリジウム 193 を含む厚さが均一な金属箔 (厚さ 50 μm) を試料として使用することと、できるかぎり統計精度を改善して測定することでイリジウム 193 の NEET 微細構造の観測を試みた。

キーワード : NEET、イリジウム 193、アバランシェダイオード検出器

背景と研究目的 :

イリジウム 193 (核励起準位 : 73.04 keV, 半減期 : 6 ns) は、「軌道電子遷移による原子核励起」 (NEET : Nuclear Excitation by Electron Transition) の確率が金 197 の場合の 10 分の 1 以下 (計算値 : 2×10^{-9} 、観測値 : $(2.8 \pm 0.4) \times 10^{-9}$) ながら NEET が観測可能である。ここにいう NEET 確率は、断面積の比 : (原子核励起) / (内殻空孔生成) で定義される。図 1 にイリジウム 193 の NEET における原子遷移と原子核励起の様子を示した。我々は課題番号 2003A0586-CD3-np の実験によってイリジウム 193 の NEET の放射光 X 線による観測にはじめて成功し^[1]、内部転換電子による NEET 確率の入射 X 線エネルギーに依存した変化を観測してきた (課題番号 2007A1111、2010B1147)。課題番号 2010B1147 では入射 X 線エネルギーの絶対値測定を精密に行い、NEET 観測の統計精度を上げたことにより、NEET 事象が観測され始めるエネルギー (NEET 端) が K 吸収端よりも 109 ± 2 eV 高いという結果を得た (図 2)。これは我々の NEET モデルによる始状態 : 特定エネルギーの電子空孔生成と軌道電子遷移後の終状態 : 核励起 + 外殻電子空孔との間のエネルギー保存関係を証明する。ただし、金 197 では金箔を使って観測された NEET 微細構造がイリジウム 193 ではまだ確認できていない。NEET 微細構造は入射 X 線エネルギーの変化に依存して、X 線電離によって放出された光電子の周囲の原子による散乱が XAFS と同様に NEET における光電離確率に影響し、内部転換電子線によって観測される原子核脱励起確率が変動して生じると考えており^[2]、

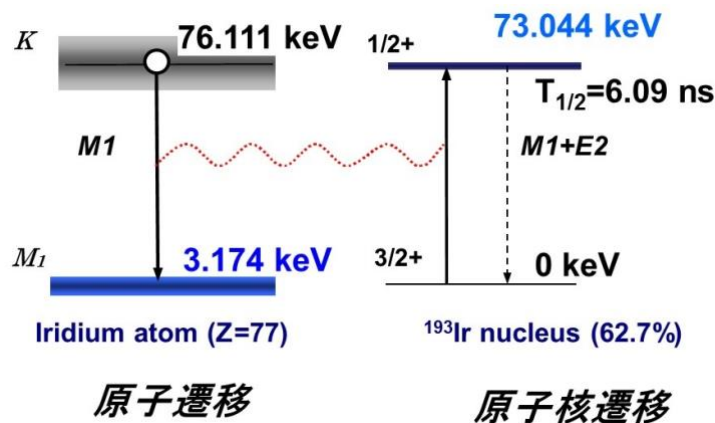


図 1 イリジウム 193 の NEET 現象。原子遷移と原子核遷移とのエネルギー・角運動量変化の関係を示す。

我々が金 197 で観測した NEET 微細構造を説明するため、2013 年には X 線電離による電子空孔生成過程を取り入れた理論モデルが提唱されている¹³⁾。今回の実験では、これまでのような粉末試料でなく厚さが均一な金属箔（厚さ 50 μm ）を試料として使用することと、できるかぎり統計精度を改善して測定することでイリジウム 193 の NEET に伴う微細構造の観測を試みた。

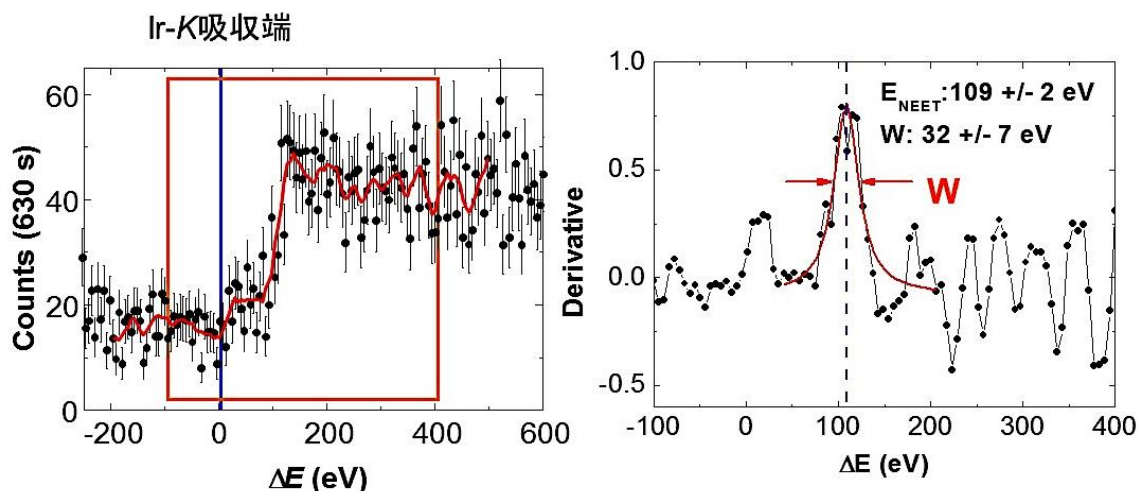


図 2 入射 X 線エネルギーに対するイリジウム 193 の NEET 事象の変化(左)。右図は左図中の四角の領域について、その微分をとったもの。イリジウム K 吸収端 ($\Delta E = 0$) より 109 eV 高いところに NEET 事象が急増する NEET 端が観測された(課題番号 2010B1147 で得た結果)。

実験：

ビームライン BL09XU において実験を実施した。光学系は Si(111)二結晶モノクロメータの三次光をアナライザ結晶 Si(111)により約 1.5° 振り上げる配置を取った。厚さ 50 μm のイリジウム金属箔（イリジウム 193 は存在比 62.7%）を試料として、最初に 73.04 keV のイリジウム 193 核共鳴を確認した。共鳴エネルギーの前後 60 eV の領域について 0.8 eV ずつ入射 X 線エネルギーを走査し、内部転換電子線用検出器によって原子核からの脱励起線（主に内部転換電子線）の計数値ピークを観測した。検出器は小型真空容器のなかに試料と一緒に組み込まれており、3 チャンネルのシリコン・アバランシェダイオード(Si-AD)ピクセルアレイ素子によるものを使った。Si-AD の 1 ピクセルの大きさは $1 \times 6 \text{ mm}^2$ 、ピクセルピッチは 1.1 mm である。入射 X 線ビームに対して 30° 傾けた試料に対して、この Si-AD 素子が約 2 mm の距離に配置された。入射 X 線ビーム強度は試料と検出器を納めた小型真空容器の上流側に設置した厚さ 500 μm のシリコン製透過型 PIN フォトダイオードで常にモニターした。試料を透過する X 線ビームの強度は小型真空容器内に取り付けた同型の PIN フォトダイオードでモニターした。検出器各ピクセルからのパルス信号はコンスタント・フラクション・ディスクリミネータ(CFD、ORTEC 社製 935)によりロジック信号に変換し、遅延回路を経て各ピクセルからの信号のタイミング調整の後に足し合わせて、時間波高変換器(TAC)とマルチチャンネルアナライザ(MCA)で核共鳴および非核共鳴（核共鳴ピークエネルギーから +60 eV）での時間スペクトル測定を行った。電子散乱による即発放射線の信号を避け即発放射線のピークより 3 ns 以上遅れた時間領域を核共鳴および NEET の計数領域として設定した。核共鳴ピークでの計数は 20 カウント、半値幅は 6 eV だった。

次に、76.10 keV のイリジウム K 吸収端近傍で K 吸収端を中心に、-300 eV から +600 eV の領域にて 6 eV ステップで入射 X 線エネルギー走査を行った。NEET の事象数をできるかぎり多く観測するために同じエネルギー領域を 1 点 30 秒で走査し計 27 回測定した。その後、NEET を測定したものと同一試料を使ってビーム強度を弱めて透過型 PIN フォトダイオードによる X 線吸収測定、および Si-AD 検出器による光電子 XAFS 測定も実施した。NEET 確率の確認のため NEET 立ち上がり（NEET 端）前後（-100 eV、+150 eV）でのエネルギーで時間スペクトルを観測した。

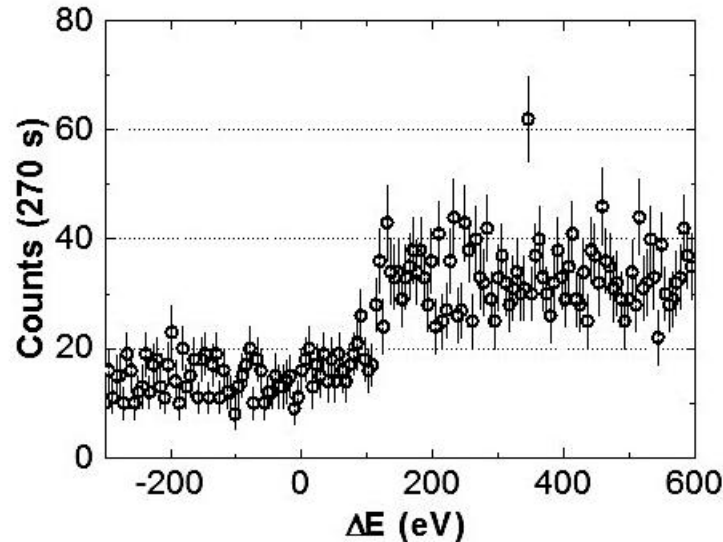


図3 入射 X 線エネルギーに対する NEET 事象数の変化。積算計測時間 270 秒の結果を示す。横軸の ΔE の値はイリジウム K 吸収端エネルギーを $\Delta E = 0 \text{ eV}$ として与えた。

結果および考察：

イリジウム K 吸収端近傍で入射 X 線エネルギー走査をした計 27 回、積算測定時間 810 秒の測定では、1 点あたり NEET 事象の平均計数率は 0.06 cps、最大 50 ± 28 カウント（バックグラウンド 30 ± 5 カウントを差し引いた値）であった。図 3 に 9 回のエネルギー走査（計測時間：270 秒）で得たイリジウム 193 の NEET 事象数の積算分布を示す。横軸の入射 X 線エネルギー $\Delta E = 0 \text{ eV}$ はイリジウム K 吸収端を表す。 $\Delta E = 100 \text{ eV}$ を越えたエネルギーで NEET 端が観測されていることがわかる。NEET 端より入射エネルギーが高い側は 30 カウント程度、NEET 端より入射エネルギーが低い側はバックグラウンド成分が 15 カウント程度となっている。 $\Delta E = 345 \text{ eV}$ のカウントは異常に大きな値となっている。このデータは制御系での通信異常等によって誤った値に書き換わった可能性がある。他のエネルギー走査で得た結果も同様で、異常な値やデータの空白が見られた。これが本実験で得たデータを学術雑誌へ投稿するために採用しなかった主な理由である。

一方、モノクロメータ冷凍機の不具合があった課題番号 2010B1147 よりも入射 X 線ビーム強度の安定性は良好で、エネルギー走査自体は比較的順調であった。その結果、前回は同程度のエネルギー範囲に対して 1 点あたり 630 秒の測定であったが、27 回のエネルギー走査、1 点あたり 810 秒の測定ができた。しかし残念ながら上述したように測定ソフトウェアの動作が不安定で測定の途中で停止する事態がエネルギー走査時の 3 回に 1 回程度発生したため、データ取得は不確実だった。また電子線検出器は課題番号 2010B1147 より前に使用した旧型だったため NEET 事象の計数率は 0.06 cps にとどまり、信号/バックグラウンド (S/B) 比も $50/30 = 1.7$ で以前の実験（課題番号 2007B1111）で得た結果 ($50/25 = 2.0$) より改善することはできなかった。

今後の課題：

本実験にあたっては、内部転換電子線を検出する検出器の立体角を向上させる改良が間に合わなかったこと、試料として用いた金属箔は入手が容易な厚さ $50 \mu\text{m}$ のもので、散乱 X 線の影響を減少させて内部転換電子検出の S/B 比を高めるため厚さ数 μm 以下のイリジウム薄膜を用いることができなかった問題があった。計測ソフトウェアの改良はビームライン担当者の努力により終了しているため、今後、実験の機会が再度得られた場合は、改良された電子線検出器と薄膜試料によって検出効率、S/B 比を改善して NEET 微細構造の測定の成功を図りたい。金 197 の微細構造測定では NEET 事象の計数率：0.4 cps、S/B 比：4.5 であったので、イリジウム 193 の NEET 確率は金 197 と比べて 1/10 以下のため達成は困難ではあるが、これらの数値を改良の目標とする。

また、金 197 とともにイリジウム 193 での測定結果を示すことによって、NEET 現象を使って原子核を特定した XAFS 測定や NEET 観測による XAFS と同様な原子構造解析の可能性を実証することができると思われる。

参考文献：

- [1] S. Kishimoto, Y. Yoda, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki, M. Seto, *Nucl. Phys. A*, **748**, 3 (2005).
- [2] S. Kishimoto, Y. Yoda, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki, M. Seto, *Phys. Rev. C*, **74**, 031301(R) (2006).
- [3] A. Y. Dzyublik, *Phys. Rev. C*, **88**, 054616 (2013).

©JASRI

(Received: January 28, 2015; Early edition: March 25, 2015; Accepted: June 29, 2015;
Published: July 21, 2015)